

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

1-5

**MANUFACTURE OF ALUMINUM NITRIDE SINTERED BODY**

Patent Number: JP63011575  
Publication date: 1988-01-19  
Inventor(s): HAYASHI ICHIRO; SUZUKI KEIICHIRO  
Applicant(s): ASAHI GLASS CO LTD  
Requested Patent: ☐ JP63011575  
Application Number: JP19860152792 19860701  
Priority Number(s): JP19860152792 19860701  
IPC Classification: C04B35/58  
EC Classification:  
Equivalents:

---

**Abstract**

---

---

Data supplied from the esp@cenet database - I2

JPS63-011575

## Specification

### 1. Title of the Invention

PRODUCTION METHOD OF ALUMINUM NITRIDE SINTERED  
BODY

### 2. Claims

1. A production method of an aluminum nitride sintered body, comprising: sintering an aluminum nitride formed body obtained by blending with 0.01 to 10% by weight in total of sulfides and/or thiocyanates of at least one kind of elements selected from Group IA elements (except H), Group IIA elements, Group IIIA elements (including lanthanides and actinides), Cu, Ag, and Zn.

2. The production method of an aluminum nitride sintered body according to claim 1, wherein the sulfides and/or thiocyanates are sulfides and/or thiocyanates of Group IIA elements.

3. The production method of an aluminum nitride sintered body according to claim 1 or 2, wherein the sulfides and/or thiocyanates are blended in an amount of 0.1 to 5% by weight in total.

### 3. Detailed Description of the Invention

#### [Field of the Invention]

The present invention relates to a production method of an aluminum nitride sintered body with high thermal conductivity.

#### [Prior Art]

An aluminum nitride sintered body has been supposed to have a high thermal conductivity theoretically; however, an aluminum nitride

powder is generally difficult to be sintered. Therefore, a variety of sintering aids for obtaining aluminum nitride sintered bodies with high density and high thermal conductivity have been proposed.

Representative examples are CaO, SrO, BaO, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, or carbonate and nitrates to easily be those oxides at the time of sintering. However, even when such oxide-based sintering aids are employed, depending on common sintering methods, aluminum nitride sintered bodies generally having thermal conductivity of only about 60 W/mK are obtained. In the case of using an oxide-based sintering aid so as to obtain aluminum nitride sintered bodies with further improved thermal conductivity, it is needed to use a special aluminum nitride powder or a second sintering aid in combination or to employ a special sintering method.

In addition to the oxide-based sintering aids, carbon, carbides, acetylides, nitrides, halides and hydrides have been proposed. However, many of these sintering aids are problematic in preparation, handling and safety property and, similarly to the case of the oxide-based sintering aids, they are accompanied with limitations in the option of raw material aluminum nitride powders and sintering conditions.

[Problems to be Solved by the Invention]

As described above, in consideration of the situation that a sintering method of an aluminum nitride powder by using conventionally widely employed oxide-based sintering aids such as those derived from oxides, carbonates, nitrates and the like cannot easily provide an aluminum nitride sintered body with sufficiently high thermal conductivity, an object of the present invention is to provide a production method of an aluminum nitride

sintered body having high thermal conductivity by employing sintering aids that are innovative, easy to prepare, handle and use and excellent in safety property.

[Means for Solving the Problems]

Accordingly, a production method of an aluminum nitride sintered body, comprises: sintering an aluminum nitride formed body obtained by blending with 0.01 to 10% by weight in total of sulfides and/or thiocyanates of at least one kind of elements selected from Group IA elements (except H), Group IIA elements, Group IIIA elements (including lanthanides and actinides), Cu, Ag, and Zn.

Hereinafter, the present invention will be described in detail.

With respect to the purity and particle size of a raw material aluminum nitride powder, any powder commonly used in this field can be used without limitations; however, it is preferable to use powders with purity of 95% or more and an average particle size of 4  $\mu\text{m}$  or less. With respect to an aluminum nitride powder for producing a high density aluminum nitride sintered body, the degree of the content of Si and oxygen attributed to contamination as impurities or oxidation of particle surface becomes an issue. In the present invention also, it is desirable that such Si content and O content in a raw material aluminum nitride powder are less; however, the present invention is not limited thereto and, for example, an aluminum nitride powder having oxygen content of 2% or more may be employed and this point is also an advantage of the present invention.

As sintering aids, sulfides and/or thiocyanates of one or more elements selected from Group IA elements (except H), Group IIA elements,

Group IIIA elements (including lanthanides and actinides), Cu, Ag, and Zn are employed.

The metal elements composing sulfides and thiocyanates are preferably Li, Na, K, Mg, Ca, Sr, Ba, Al, Y, La, Ce, Cu, Ag, and Zn from a viewpoint of practical use. Sulfides and/or thiocyanates of Group IIA elements, especially Mg, Ca, Sr, and Ba among them, are desirable from a viewpoint of attainment of high thermal conductivity. Generally, one kind of these sulfides and thiocyanates is used and two or more kinds of them may be used. Further, within the scope of the object and the effect of the present invention, sintering aids other than sulfides and thiocyanates may be used in combination.

The content in total of the above-mentioned sulfides and/or thiocyanates as sintering aids is 0.01 to 10% by weight on the basis of interpolation in the weight of an aluminum nitride powder. When the blend amount of the sintering aids is less than 0.01%, the effect of the sintering aids cannot be sufficiently exhibited and when it exceeds 10%, the sintering is adversely inhibited or the characteristics of such as the thermal conductivity are deteriorated. According to the results of experiments, the blend amount is particularly preferable to be 0.1 to 5% by weight.

An aluminum nitride powder blended with a predetermined amount of sintering aids is formed into a desired shape as it is or as being added with an appropriate forming binder by a cold press, rubber press, or doctor blade formation method. The resulting formed body is subjected to sintering under isostatic pressure or sintering under uniaxial pressure (so-called hot press sintering). In the case of sintering under isostatic

pressure, a common sintering method for carrying out sintering in about atmospheric pressure or in reduced pressure including vacuum can be simply employed and, for example, a sintering method under isostatic pressure of 2 to 500 atmospheric pressure, especially preferably 5 to 100 atmospheric pressure, and a method, so-called hydroisostatic pressure sintering method, under further higher pressure of 1000 to 2000 atmospheric pressure may be employed. Non-oxidizing atmosphere of nitrogen, hydrogen or the like may be employed as the ambient atmosphere at the time of sintering and although it depends on the sintering method, the sintering temperature is generally 1500 to 2100°C.

#### [Operations and Effects]

Accordingly, while in the case of a conventional method for carrying out common sintering using oxide-based sintering aids, the thermal conductivity of the obtained aluminum nitride sintered body is at highest about 60 W/mK, in the case of the present invention, a sintered body obtained by common sintering is provided with thermal conductivity as high as, for example, 90 to 130 W/mK and also with a high density. Further, by a hot-press sintering method, it is possible to provide thermal conductivity as further high as 180 W/mK.

The reason why it is possible to obtain an aluminum nitride sintered body having such high thermal conductivity by the method is supposed to be as follows. That is, the above-mentioned sintering aids to be employed in the present invention are free from oxygen in their molecules except oxygen contaminating in form of impurities or attendant on crystal water and, accordingly, they are not converted simply into oxides. On the other hand,

conventionally known oxides, carbonates, nitrates, and sulfates of such as  $\text{CaSO}_4$  exemplified in Japanese Unexamined Patent Publication No. 50-23411 are all converted easily into stable oxides by firing and remain in resulting sintered bodies. Such oxides are effective as sintering aids for an aluminum nitride powder, which is hard to be sintered, and simultaneously result in the existence of oxygen in grain boundary phases to inhibit improvement of the thermal conductivity. On the contrary, the above-mentioned sulfide and thiocyanates, similarly to O, S, exists stably as a divalent anionic element and works as a reducing agent to oxygen and form bonds with oxygen components derived from a raw material aluminum nitride powder, sintering aids, the ambient gas and the like to remove the oxygen components to the outside. Accordingly, it is supposed that sulfur derived from the sintering aids suppresses or prevents the existence of oxygen in grain boundary phases that inhibits improvement of the thermal conductivity of aluminum nitride sintered bodies. Moreover, as compared with acetylides, hydrides or carbon, they are excellent in preparation, handling and safety properties.

According to a production method of the present invention, aluminum nitride sintered bodies having high density and high strength as well as high thermal conductivity can be readily and easily obtained and many of the aluminum nitride sintered bodies have light transmitting property as well.

#### [Examples]

Hereinafter, the present invention will be practically described by way of examples; however, it is not intended that the present invention be



limited to these examples.

#### Example 1

To an aluminum nitride powder with an average particle diameter of 1.5  $\mu\text{m}$  and an oxygen content of 2.5%, were added predetermined parts by weight of a variety of kinds of sulfides as shown in Table 1 to obtain mixtures each in 100 parts by weight in total. Each of the resulting mixtures was formed into a formed body by a cold isostatic pressing method. It is noted that, in the case of additives having crystal water, the weights which did not include the weight of the crystal water were shown. Each formed body was sintered in a common manner at 1900°C for 2 hours in nitrogen atmosphere of atmospheric pressure to obtain an aluminum nitride sintered body. The density and the thermal conductivity of each obtained aluminum nitride sintered body are shown in Table 1.

#### Example 2

To an aluminum nitride powder with an average particle diameter of 1.5  $\mu\text{m}$  and an oxygen content of 1.8% were added predetermined parts by weight of a variety of kinds of sulfides as shown in Table 2 to obtain mixtures each in 100 parts by weight in total. Each of the resulting mixtures was formed into a formed body by a cold isostatic pressing method. It is noted that, in the case of additives having crystal water, the weights which did not include the weight of the crystal water were shown. Each formed body was sintered by hot press at 1850°C for 2 hours in nitrogen atmosphere of 300 kg/cm<sup>2</sup> pressures to obtain an aluminum nitride sintered body. The density and the thermal conductivity of each obtained aluminum nitride sintered body are shown in Table 2.

It is noted that the mark \* attached to the items of Tables 1 and 2 shows comparative examples, the mark \*\* shows those for which two types of additives were added together, and the addition amounts shown in front are for the elements shown in front and those in rear are for those in rear.

Table 1

| Type of additive               | Amount of additive<br>(part by weight) | Density<br>(g/cm <sup>3</sup> ) | Thermal conductivity<br>(W/mK) |
|--------------------------------|--|---------------------------------|--------------------------------|
| *CaS                           | 0.005                                  | 3.14                            | 80                             |
| CaS                            | 0.02                                   | 3.23                            | 118                            |
| CaS                            | 1                                      | 3.26                            | 131                            |
| CaS                            | 3                                      | 3.25                            | 120                            |
| CaS                            | 8                                      | 3.22                            | 98                             |
| *CaS                           | 12                                     | 3.01                            | 70                             |
| MgS                            | 1                                      | 3.15                            | 95                             |
| SrS                            | 1                                      | 3.24                            | 125                            |
| BaS                            | 1                                      | 3.21                            | 110                            |
| Li <sub>2</sub> S              | 1                                      | 3.16                            | 95                             |
| Na <sub>2</sub> S              | 1                                      | 3.14                            | 90                             |
| K <sub>2</sub> S               | 1                                      | 3.18                            | 95                             |
| Al <sub>2</sub> S <sub>3</sub> | 1                                      | 3.15                            | 90                             |
| Y <sub>2</sub> S <sub>3</sub>  | 1                                      | 3.28                            | 128                            |
| La <sub>2</sub> S <sub>3</sub> | 1                                      | 3.24                            | 122                            |
| Ce <sub>2</sub> S <sub>2</sub> | 1                                      | 3.24                            | 113                            |
| Cu <sub>7</sub> S              | 1                                      | 3.15                            | 90                             |
| CuS                            | 1                                      | 3.15                            | 90                             |
| Ag <sub>2</sub> S              | 1                                      | 3.17                            | 85                             |
| ZnS                            | 1                                      | 3.15                            | 90                             |
| Ca(SCN) <sub>2</sub>           | 1                                      | 3.26                            | 130                            |
| Ba(SCN) <sub>2</sub>           | 1                                      | 3.25                            | 120                            |
| LiSCN                          | 1                                      | 3.22                            | 103                            |
| KSCN                           | 1                                      | 3.23                            | 92                             |
| AgSCN                          | 1                                      | 3.24                            | 98                             |
| CuSCN                          | 1                                      | 3.22                            | 102                            |
| **CaS+Ca(SCN) <sub>2</sub>     | 1+1                                    | 3.25                            | 121                            |
| **BaS+LiSCN                    | 1+0.2                                  | 3.24                            | 117                            |
| *CaCO <sub>3</sub>             | 0                                      | 3.20                            | 60                             |

Table 2

| Type of additive               | Amount of additive<br>(part by weight) | Density<br>(g/cm <sup>3</sup> ) | Thermal conductivity<br>(W/mK) |
|--------------------------------|--|---------------------------------|--------------------------------|
| CaS                            | 1                                      | 3.26                            | 182                            |
| BaS                            | 1                                      | 3.24                            | 164                            |
| Li <sub>2</sub> S              | 1                                      | 3.23                            | 141                            |
| Y <sub>2</sub> S <sub>3</sub>  | 2                                      | 3.26                            | 180                            |
| La <sub>2</sub> S <sub>3</sub> | 3                                      | 3.26                            | 171                            |
| Ca(SCN) <sub>2</sub>           | 1                                      | 3.26                            | 176                            |
| Ba(SCN) <sub>2</sub>           | 1                                      | 3.24                            | 152                            |
| **CaS+Ca(SCN) <sub>2</sub>     | 0.5+0.5                                | 3.26                            | 179                            |
| **BaS+LiSCy                    | 0.5+0.5                                | 3.25                            | 174                            |
| *CaF <sub>2</sub>              | 1                                      | 3.25                            | 120                            |
| *None                          | -                                      | 3.14                            | 60                             |

⑬ Int.Cl.

C 04 B 35/58

識別記号

104

庁内整理番号

F-7158-4G

B-7158-4G

A-7158-4G

⑭ 公開 昭和63年(1988)1月19日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑮ 発明の名称 窒化アルミニウム焼結体の製造法

⑯ 特 願 昭61-152792

⑰ 出 願 昭61(1986)7月1日

⑱ 発 明 者 林 一 郎 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町松原1150 旭硝子株式会社  
研究開発部内

⑲ 発 明 者 鈴木 恵 一 郎 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町松原1150 旭硝子株式会社  
研究開発部内

⑳ 出 願 人 旭硝子株式会社 東京都千代田区丸の内2丁目1番2号

㉑ 代 理 人 弁理士 内 田 明 外2名

明 細 書

1. 発明の名称

窒化アルミニウム焼結体の製造法

2. 特許請求の範囲

1. I A 族元素(ただしHを除く)、II A 族元素、III A 族元素(ただしランタノイド元素およびアクチノイド元素を含む)、Cu、AgおよびZnから選ばれる元素の一種以上の酸化物および/またはチオシアン酸塩を総量で0.01~10重量%配合されてなる窒化アルミニウム粉末の成形体を焼結することを特徴とする窒化アルミニウム焼結体の製造法。

2. 前記酸化物および/またはチオシアン酸塩はII A 族元素の酸化物および/またはチオシアン酸塩である特許請求の範囲第1項記載の窒化アルミニウム焼結体の製造法。

3. 前記酸化物および/またはチオシアン酸塩を総量で0.1~5重量%配合されてなる特許請求の範囲第1項または第2項記載の窒化アル

ミニウム焼結体の製造法。

3. 発明の詳細な説明

[産業上の利用分野]

本発明は、高い熱伝導率を有する窒化アルミニウム焼結体の製造法に関する。

[従来の技術]

窒化アルミニウム焼結体は、理論的には高い熱伝導率を有することが予測されているが、窒化アルミニウム粉末は一般に焼結が困難でもある。そこで、高密度・高熱伝導率の窒化アルミニウム焼結体を得るための各種の焼結助剤が提案されている。

その代表的なものは、CaO、SrO、BaO、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、あるいは焼結時に容易にこうした酸化物となる炭酸塩、硝酸塩である。しかし、このような酸化物系焼結助剤を採用しても、通常焼結法によっては一般に60W/mK程度の熱伝導率を有する窒化アルミニウム焼結体しか得られない。酸化物系焼結助剤を用いて、さらに高い熱伝導率を有する窒化アルミニウム焼結体を得ようとする。

特殊な原料窒化アルミニウム粉末を使用したり、第二の焼結助剤を併用したり、特殊な焼結法を採用したりする必要があった。

酸化物系以外の焼結助剤として、炭素、炭化物、アセチリド、窒化物、ハロゲン化合物、元素化合物なども提案されている。しかし、こうした焼結助剤の多くは、調製・取扱い・安全性の点で問題があったり、酸化物系焼結助剤の場合と同様に、原料窒化アルミニウム粉末や焼結条件の選択に制約を伴うものであった。

#### [発明の解決すべき問題点]

このように、従来から多用されている酸化物、炭酸塩、硝酸塩などの酸化物系焼結助剤を用いる窒化アルミニウム粉末の焼結によっては、いまだ十分に高い熱伝導率を得る窒化アルミニウム焼結体が容易には得られないことに鑑み、本発明は、新規にして、かつ、調製・取扱い・安全性などの点でも簡便に使用できる焼結助剤を用いることにより、すぐれた熱伝導率を得る窒化アルミニウム焼結体の製造法を提

供することを目的とする。

#### [問題点を解決するための手段]

しかし、本発明の窒化アルミニウム焼結体の製法は、I A族元素（ただしHを除く）、II A族元素、III A族元素（ただしランタノイド元素およびアクチノイド元素を含む）、Cu、AgおよびZnから選ばれる元素の一種以上の窒化物および/またはチオシアン酸塩を重量で0.01~10重量%配合されてなる窒化アルミニウム粉末の成形体を焼結することを特徴とする。

以下に本発明を詳細に説明する。

原料窒化アルミニウム粉末の純度、粒径については、この分野で常用されるものであれば格別の制約なしに使用できるが、純度としては95%以上のもの、平均粒径としては4 $\mu$ m以下のものが好ましい。高密度窒化アルミニウム焼結体製造用窒化アルミニウム粉末に関しては、不純物として混入し、あるいは粒子表面の酸化などによってもたらされるSi含量、酸素含量の多寡が一般には問題とされる。本発明においても原

料以外の焼結助剤を併用してもよい。

焼結助剤としての前記した窒化物および/またはチオシアン酸塩はその合計量として、窒化アルミニウム粉末重量に対し、内掛けで0.01~10重量%配合される。配合量が0.01%より少ないと焼結助剤の効果が充分に発現されないし、10%より多いと、かえって焼結を阻害したり、熱伝導率などの特性を損なう。実験結果によると、配合量を0.1~5重量%とするのが特に好ましい。

焼結助剤を所定量配合された窒化アルミニウム粉末はそのまま、あるいは適宜な成形バインダを添加された上でコールドプレス、ラバープレス、ドクターブレード成形法などにより所望形状に成形される。得られた成形体は均等圧下の焼結あるいは一軸加圧下の焼結（いわゆるホットプレス焼結）などに供される。均等圧下の焼結にあつては大気圧前後ないしは真空を含む減圧下で焼結する通常の焼結法が簡便に採用されるが、たとえば2~500気圧、特に5~

原料窒化アルミニウム粉末中のこうしたSi含量、酸素含量は小さい方が望ましいものの、これに制約されず、例えば酸素含量が2%以上の窒化アルミニウム粉末であってもよく、この点も本発明の利点の一つである。

焼結助剤としてはI A族（ただしHを除く）、II A族、III A族（ただしランタノイド元素およびアクチノイド元素を含む）、Cu、AgおよびZnから選ばれる一種または二種以上の元素の窒化物および/またはチオシアン酸塩が採用される。

窒化物、チオシアン酸塩を構成する金属元素種としては、Li、Na、K、Mg、Ca、Sr、Ba、Al、Y、La、Ce、Cu、Ag、Znが実用的には好ましい。II A族元素、なかでもMg、Ca、Sr、Baの窒化物および/またはチオシアン酸塩が高い熱伝導率を得る点では望ましい。こうした窒化物、チオシアン酸塩は通常はいずれか一種を使用するが、二種以上を併用してもよい。さらに本発明の目的・効果を出わない範囲で窒化物ないしはチオシアン酸

100 気圧の均等加圧下の焼結法や、これを上回ってさらに1000～2000気圧といったいわゆる熱間静水圧加圧焼結法を採用してもよい。焼結時の雰囲気は窒素または水素などの非酸化性雰囲気を採用され、焼結温度は焼結法にもよるが、通例は1500～2100℃が採用される。

#### [作用および効果]

しかして、従来法の酸化物系焼結助剤を用いて通常焼結した場合には得られた窒化アルミニウム焼結体の熱伝導率はおおよそ60W/mK程度にとどまるのに対し、本発明によれば、通常焼結法による焼結体であってもこれを上回って、例えば90～130W/mKといった熱伝導率を有し、かつ、高密度を備える。また、ホットプレス焼結法による焼結体は、さらに180W/mKといった高い熱伝導率を備えることも可能である。

本発明によって何れかか高い熱伝導率を具備する窒化アルミニウム焼結体が得られるかについては次のような理由によるものと考えられる。すなわち、本発明に用いられる上述の焼結

考えられる。その上、例えばアセチリド、水素化合物、炭素などと比べても調製・取扱ひ・安全性の点ですぐれている。

本発明の製造法によれば高密度高強度にし、かつ高い熱伝導率を有する窒化アルミニウム焼結体が簡単に得られ、かつこの窒化アルミニウム焼結体の多くは透光性を有する。

#### [実施例]

以下に実施例によって本発明を具体的に例示するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

#### 実施例 1

平均粒径1.5  $\mu\text{m}$ 、酸素含有量2.5 %の窒化アルミニウム粉末に第1表に示す各種酸化物などの添加剤を所定重量部添加して全体を100重量部とし、得られた混合粉末を冷間静水圧プレス法によって成形体とした。なお、結晶水を有する添加剤については結晶水の分を排除した重量である。この成形体を大気圧の窒素雰囲気下にて1900℃で2時間通常焼結して窒化アルミニウ

助剤は、不純物として混入したり結晶水などとして付随的に存在する分を除くと分子中に酸素分がなく、したがって焼結中に単純に酸化物となるものではない。これに対し、従来より公知の酸化物、炭酸塩、硝酸塩、さらには特開昭50-23411で例示されている $\text{CaSO}_4$ などの硫酸塩は、いずれも焼成によって容易に安定な酸化物となって焼結体中に残存する。こうした酸化物は強焼結性である窒化アルミニウム粉末の焼結助剤として効くと同時に、粒界相中に酸素分が存在することによって熱伝導率の向上を阻害する。一方、上記した酸化物やチオシアン酸塩においては、SはOと同様に2価の陰性元素として安定に存在するとともに、酸素に対しては還元剤として機能し、原料窒化アルミニウム粉末、焼結助剤、雰囲気その他に由来する酸素分と焼結過程で結合して、この酸素分を外部に排除する作用を有し、もって窒化アルミニウム焼結体中の熱伝導率向上を阻害する粒界相の酸素の存在を抑制ないしは防止するものと

ム焼結体を得た。得られた窒化アルミニウム焼結体の密度と熱伝導率を第1表に示す。

#### 実施例 2

平均粒径1.5  $\mu\text{m}$ 、酸素含有量1.8 %の窒化アルミニウム粉末に第2表に示す各種酸化物などの添加剤を所定重量部添加して全体を100重量部とし、得られた混合粉末を冷間静水圧プレス法によって成形体とした。なお、結晶水を有する添加剤については結晶水の分を排除した重量である。この成形体を窒素雰囲気下にて300 kg/cm<sup>2</sup>の圧力にて1850℃、2時間ホットプレス焼結して窒化アルミニウム焼結体を得た。得られた窒化アルミニウム焼結体の密度と熱伝導率を第2表に示す。

なお、第1表および第2表において本印は比較例であり、本本印は2種の添加剤を併用したものであり、各添加剤の添加量は前者同士、後者同士が対応する。

第 1 表

| 試<br>の<br>加<br>精<br>類          | 試<br>加<br>量<br>(重量部) | 密<br>度<br>( $\text{g/cm}^3$ ) | 熱伝導率<br>( $\text{W/mK}$ ) |
|--------------------------------|----------------------|-------------------------------|---------------------------|
| *CaS                           | 0.005                | 3.14                          | 80                        |
| CaS                            | 0.02                 | 3.23                          | 118                       |
| CaS                            | 1                    | 3.26                          | 131                       |
| CaS                            | 3                    | 3.25                          | 120                       |
| CaS                            | 8                    | 3.22                          | 98                        |
| *CaS                           | 12                   | 3.01                          | 70                        |
| MgS                            | 1                    | 3.15                          | 95                        |
| SrS                            | 1                    | 3.24                          | 125                       |
| BaS                            | 1                    | 3.21                          | 110                       |
| Li <sub>2</sub> S              | 1                    | 3.18                          | 95                        |
| Na <sub>2</sub> S              | 1                    | 3.14                          | 90                        |
| K <sub>2</sub> S               | 1                    | 3.18                          | 95                        |
| Al <sub>2</sub> S <sub>3</sub> | 1                    | 3.15                          | 90                        |
| Y <sub>2</sub> S <sub>3</sub>  | 1                    | 3.26                          | 128                       |
| La <sub>2</sub> S <sub>3</sub> | 1                    | 3.24                          | 122                       |
| Ce <sub>2</sub> S <sub>3</sub> | 1                    | 3.24                          | 113                       |
| Cu <sub>2</sub> S              | 1                    | 3.15                          | 90                        |
| CuS                            | 1                    | 3.15                          | 90                        |
| Ag <sub>2</sub> S              | 1                    | 3.17                          | 95                        |
| ZnS                            | 1                    | 3.15                          | 90                        |
| Ca(SCN) <sub>2</sub>           | 1                    | 3.26                          | 130                       |
| Ba(SCN) <sub>2</sub>           | 1                    | 3.25                          | 120                       |
| LiSCN                          | 1                    | 3.22                          | 109                       |
| KSCN                           | 1                    | 3.23                          | 92                        |
| AgSCN                          | 1                    | 3.24                          | 98                        |
| CuSCN                          | 1                    | 3.22                          | 102                       |
| **CaS+Ca(SCN) <sub>2</sub>     | 1+1                  | 3.25                          | 121                       |
| **BaS+LiSCN                    | 1+0.5                | 3.24                          | 117                       |
| *CaCO <sub>3</sub>             | 1                    | 3.20                          | 60                        |

第 2 表

| 試<br>の<br>加<br>精<br>類          | 試<br>加<br>量<br>(重量部) | 密<br>度<br>( $\text{g/cm}^3$ ) | 熱伝導率<br>( $\text{W/mK}$ ) |
|--------------------------------|----------------------|-------------------------------|---------------------------|
| CaS                            | 1                    | 3.26                          | 182                       |
| BaS                            | 1                    | 3.24                          | 164                       |
| Li <sub>2</sub> S              | 1                    | 3.23                          | 141                       |
| Y <sub>2</sub> S <sub>3</sub>  | 2                    | 3.26                          | 180                       |
| La <sub>2</sub> S <sub>3</sub> | 3                    | 3.26                          | 171                       |
| Ca(SCN) <sub>2</sub>           | 1                    | 3.26                          | 178                       |
| Ba(SCN) <sub>2</sub>           | 1                    | 3.24                          | 152                       |
| **CaS+Ca(SCN) <sub>2</sub>     | 0.5+0.5              | 3.26                          | 179                       |
| **BaS+LiSCN                    | 0.5+0.5              | 3.25                          | 174                       |
| *CaF <sub>2</sub>              | 1                    | 3.25                          | 120                       |
| *なし                            | -                    | 3.14                          | 60                        |

代理人 内 田 明  
代理人 萩 原 亮 夫  
代理人 安 西 篤